





# CASCADE TYPE ORGANIC ELECTROLUMINESCENT DEVICE

**Patent number:** JP2004342614  
**Publication date:** 2004-12-02  
**Inventor:** LIAO LIANG-SHENG; KLUBEK KEVIN P; COMFORT DUSTIN L;  
 TANG CHING W  
**Applicant:** EASTMAN KODAK CO  
**Classification:**  
 - international: **H05B33/12; H01L27/32; H01L51/50; H05B33/12; H01L27/28; H01L51/50;** (IPC1-7): H05B33/12; H05B33/14  
 - european: H01L27/32C2  
**Application number:** JP20040143802 20040513  
**Priority number(s):** US20030437195 20030513

## Also published as:

 EP1478025 (A2)  
 US6936961 (B2)  
 US2004227460 (A)  
 CN1610466 (A)

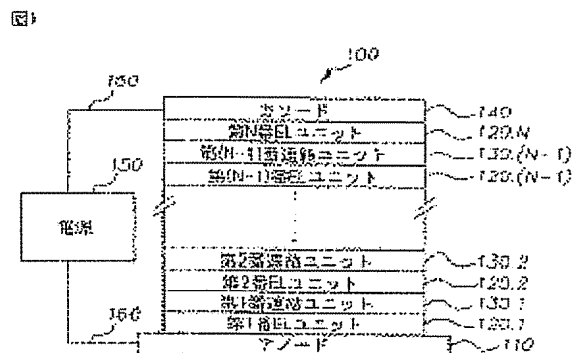
[Report a data error here](#)

## Abstract of JP2004342614

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To increase a light extraction amount of a cascade type organic electroluminescent device.

**SOLUTION:** In the organic electroluminescent unit includes (a) an anode, (b) a cathode, and (c) a plurality of organic electroluminescent units which are arranged between the anode and the cathode and includes at least a hole transport layer, an electron transport layer, and an electroluminescent band area formed between the hole transport layer and the electron transport layer, and in which a physical space between the neighboring electroluminescent band areas is larger than 90 nm, and (d) in a coupling unit arranged between the neighboring organic electroluminescent units, this is the cascade type organic electroluminescent device constituted so that a transparent p-n joint structure is formed by including an n-type doped organic layer and a p-type doped organic layer in this order, and furthermore, so that each of the doped organic layers includes a coupling unit having a resistivity higher than 10 [Omega]-cm.

COPYRIGHT: (C)2005,JPO&NCIP



Data supplied from the [esp@cenet](mailto:esp@cenet) database - Worldwide

**Family list****5** family members for:**JP2004342614**

Derived from 4 applications.

- 1 Cascaded organic electroluminescent device having connecting units with n-type and p-type organic layers**  
Publication info: **CN1610466 A** - 2005-04-27
- 2 Cascaded organic electroluminescent device having connecting units with n-type and p-type organic layers**  
Publication info: **EP1478025 A2** - 2004-11-17
- 3 CASCADE TYPE ORGANIC ELECTROLUMINESCENT DEVICE**  
Publication info: **JP2004342614 A** - 2004-12-02
- 4 Cascaded organic electroluminescent device having connecting units with N-type and P-type organic layers**  
Publication info: **US6936961 B2** - 2005-08-30  
**US2004227460 A1** - 2004-11-18

---

Data supplied from the **esp@cenet** database - Worldwide

(51) Int. Cl. <sup>7</sup>

H 0 5 B 33/12

H 0 5 B 33/14

F I

H 0 5 B 33/12

H 0 5 B 33/14

C

A

テーマコード(参考)

3 K 0 0 7

審査請求 未請求 請求項の数10 O L (全24頁)

(21) 出願番号 特願2004-143802 (P2004-143802)  
(22) 出願日 平成16年5月13日 (2004.5.13)  
(31) 優先権主張番号 10/437195  
(32) 優先日 平成15年5月13日 (2003.5.13)  
(33) 優先権主張国 米国 (US)

(71) 出願人 590000846  
イーストマン コダック カンパニー  
アメリカ合衆国, ニューヨーク 1 4 6 5 0  
, ロチェスター, ステイト ストリート 3  
4 3  
(74) 代理人 100099759  
弁理士 青木 篤  
(74) 代理人 100077517  
弁理士 石田 敬  
(74) 代理人 100087413  
弁理士 古賀 哲次  
(74) 代理人 100128495  
弁理士 出野 知  
(74) 代理人 100082898  
弁理士 西山 雅也

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 カスケード式有機電場発光デバイス

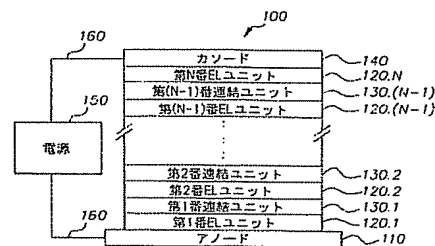
(57) 【要約】

【課題】 カスケード式有機電場発光デバイスの光抽出量を高めること。

【解決手段】 a) アノード、b) カソード、c) 該アノードと該カソードの間に配置された複数の有機電場発光ユニットであって、少なくとも正孔輸送層、電子輸送層および該正孔輸送層と該電子輸送層との間に形成された電場発光帯域を含み、かつ、隣り合う該電場発光帯域の間の物理的間隔が90nmより大である有機電場発光ユニット、ならびにd) 各隣接有機電場発光ユニット間に配置された連結ユニットであって、順にn型ドーフト有機層およびp型ドーフト有機層を含むことにより透明なp-n接合構造を形成し、かつ、該ドーフト有機層の各々が10Ω-cmより高い抵抗率を有する連結ユニットを含んで成るカスケード式有機電場発光デバイス。

【選択図】 図1

図1



## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

- a) アノード、
- b) カソード、

c) 該アノードと該カソードの間に配置された複数の有機電場発光ユニットであって、少なくとも正孔輸送層、電子輸送層および該正孔輸送層と該電子輸送層との間に形成された電場発光帯域を含み、かつ、隣り合う該電場発光帯域の間の物理的間隔が  $90\text{ nm}$  より大である有機電場発光ユニット、ならびに

d) 各隣接有機電場発光ユニット間に配置された連結ユニットであって、順に  $n$  型ドーフト有機層および  $p$  型ドーフト有機層を含むことにより透明な  $p-n$  接合構造を形成し、  
かつ、該ドーフト有機層の各々が  $10\ \Omega\text{-cm}$  より高い抵抗率を有する連結ユニット  
を含んで成るカスケード式有機電場発光デバイス。 10

## 【請求項 2】

該連結ユニットの各々が、スペクトルの可視領域において  $90\%$  以上の光透過率を有する、請求項 1 に記載のカスケード式有機電場発光デバイス。

## 【請求項 3】

該連結ユニットの各々の厚さが  $1\sim 400\text{ nm}$  の範囲内にある、請求項 1 に記載のカスケード式有機電場発光デバイス。

## 【請求項 4】

該  $n$  型ドーフト有機層の該  $p$  型ドーフト有機層に対する厚さ比が  $1:10\sim 10:1$  の  
範囲内にある、請求項 1 に記載のカスケード式有機電場発光デバイス。 20

## 【請求項 5】

各有機電場発光ユニットの該電場発光帯域から当該反射性カソードまでの光学距離が、  
 $0.8 \times [(2m+1) \times (\lambda/4)]$  から  $1.2 \times [(2m+1) \times (\lambda/4)]$  までの  
範囲内で選ばれるに際し、 $m$  は  $0, 1, 2, 3$  またはそれ以上の整数であり、かつ、 $\lambda$   
は該電場発光ユニットのピーク発光波長である、請求項 1 に記載のカスケード式有機電場  
発光デバイス。

## 【請求項 6】

各有機電場発光ユニットの該電場発光帯域から当該反射性カソードまでの光学距離が、  
 $[(2m+\eta) \times (\lambda/4)]$  として、光抽出量を最適化し得るように選ばれるに際し、  
 $m$  は  $0, 1, 2, 3$  またはそれ以上の整数であり、 $\eta$  は  $0.6\sim 1.0$  の範囲内で選ばれる  
係数であり、かつ、 $\lambda$  は該電場発光ユニットのピーク発光波長である、請求項 1 に記載  
のカスケード式有機電場発光デバイス。 30

## 【請求項 7】

各有機電場発光ユニットの該電場発光帯域と当該反射性電極との間の物理的間隔が、対  
応する光学距離に従い選定されている、請求項 1 に記載のカスケード式有機電場発光デバ  
イス。

## 【請求項 8】

該電場発光ユニットの各電場発光帯域間の物理的間隔が、当該電場発光デバイスからの  
光抽出量を向上させるように選定されている、請求項 1 に記載のカスケード式有機電場発  
光デバイス。 40

## 【請求項 9】

各有機電場発光ユニットの該電場発光帯域から当該反射性電極までの物理的間隔が、該  
連結ユニットの厚さを変更することによって調整される、請求項 1 に記載のカスケード式  
有機電場発光デバイス。

## 【請求項 10】

各有機電場発光ユニットの該電場発光帯域から当該反射性電極までの物理的間隔が、該  
連結ユニットのホスト材料として適切な屈折率を有するものを選択することによって調整  
される、請求項 1 に記載のカスケード式有機電場発光デバイス。

## 【発明の詳細な説明】

## 【技術分野】

## 【 0 0 0 1 】

本発明は、複数の有機電場発光 (EL) ユニットを提供することによりカスケード式有機電場発光デバイスを形成することに関する。

## 【背景技術】

## 【 0 0 0 2 】

有機電場発光 (EL) デバイスまたは有機発光デバイス (OLED) は、印加電位差に応じて発光する電子デバイスである。OLEDの構造は、順に、アノード、有機EL媒体およびカソードを含む。アノードとカソードの間に配置された有機EL媒体は、通常、有機正孔輸送層 (HTL) および有機電子輸送層 (ETL) を含む。ETL内のHTL/ETL界面付近で正孔と電子が再結合することにより光が放出される。Tang他著「Organic Electroluminescent Diodes」 (Applied Physics Letters, 51, 913 (1987)) および譲受人共通の米国特許第 4 7 6 9 2 9 2 号明細書に、このような層構造を採用した高効率OLEDが実証されている。その後、層構造の異なる数多くのOLEDが開示されている。例えば、Adachi他著「Electroluminescence in Organic Films with Three-Layer Structure」 (Japanese Journal of Applied Physics, 27, L269 (1988)) およびTang他著「Electroluminescence of Doped Organic Thin Films」 (Journal of Applied Physics, 65, 3610 (1989)) に開示されているもののような、HTLとETLの間に有機発光層 (LEL) を含めた3層形OLEDがある。LELは、通常、ホスト材料にゲスト材料をドープしてなる。ここで、当該層構造はHTL/LEL/ETLと表示される。さらに、デバイス内に正孔注入層 (HIL) および/または電子注入層 (EIL) および/または正孔阻止層および/または電子阻止層を含む別の多層形OLEDもある。このような構造によってデバイス性能が一層向上することとなった。

## 【 0 0 0 3 】

その上、OLEDの性能をさらに向上させるため、複数のOLED個体を垂直に積み上げて製造される、いわゆるスタック型OLEDという新種のOLED構造体も提案されている。Forrestらの米国特許第 5 7 0 3 4 3 6 号及びBurrowsらの米国特許第 6 2 7 4 9 8 0 号明細書に、彼等のスタック型OLEDが記載されている。彼等の発明では、同一色又は異色の光を別個独立に放出する複数のOLEDを垂直に積み上げることにより、スタック型OLEDが製造される。彼等のスタック型OLED構造体は、当該表示装置において積算濃度が一層高いフルカラー発光デバイスの製造を可能にするが、デバイス内のOLEDユニット毎に独立した電源が必要となる。別の設計として、Tanakaらの米国特許第 6 1 0 7 7 3 4 号明細書及びJonesらの米国特許第 6 3 3 7 4 9 2 号明細書に、複数のOLEDを垂直に積み上げるに際し、当該スタックにおけるOLEDユニットを個別にはアドレスせずに製造されたスタック型OLED構造体が提案されている。Tanakaらは、そのスタック型構造により、輝度出力または動作寿命を向上させることができたとしている。

## 【 0 0 0 4 】

上記のスタック型OLEDは、その中の個々のOLEDユニットを接続するための中間電極として、電気抵抗が  $0.1 \Omega\text{-cm}$  より低い、金属、合金または他の無機化合物を使用する。このようなデバイス構成は、製造上重大な問題を提起する。第1に、 $\text{In-Zn-O}$ 系酸化物薄膜または $\text{In-Sn-O}$ 系酸化物薄膜のような中間電極は、イオンスパッタ法で加工製作される。この方法は有機表面に損傷与える [Liao他「Ion-beam-induced surface damages on tris-(8-hydroxyquinoline)aluminum」 (Applied Physics Letters, 75, 1619, 1999)]。第2に、このような電極は、厚さに制約があるため、デバイス内の光反射長を調整して光抽出量を高めるためのスペーサとして使用することができない。第3に、中間電極が不連続層である場合、そのキャリア注入能が低いためにEL性能が低下してしまう。中間電極が連続層である場合には、その横方向導電性が高いために画素のクロストークがひどくなる上、光透過性が低いために光抽出量が少なくなる (画素クロストークとは、点灯している画素に隣接する画素が、横方向導電性が高いために、望ましくない光を放出することを意味する)。従来技術では、各中間電極を画素化するためにシャドーマスクを使用するか、または、OLED製造の初期段階で基板上に各画素を画定するために絶縁層を付着させる。どちら

の方法も複雑であり、製品の歩留りを低下させてしまう。

【0005】

【特許文献1】米国特許第4769292号明細書

【特許文献2】米国特許第5703436号明細書

【特許文献3】米国特許第6274980号明細書

【特許文献4】米国特許第6107734号明細書

【特許文献5】米国特許第6337492号明細書

【非特許文献1】Liao他著「Ion-beam-induced surface damages on tris-(8-hydroxyquinoline)aluminum」、Applied Physics Letters、第75巻、第11号、第1619-1621頁、1999年9月13日

10

【非特許文献2】C.W. Tang他著「Electroluminescence of doped organic thin films」、J. Appl. Phys.、第65巻、第9号、第3610-3616頁、1989年5月1日

【非特許文献3】C.W. Tang他著「Organic electroluminescent diodes」、Appl. Phys. Lett.、第51巻、第12号、第913-915頁、1987年9月21日

【非特許文献4】Chihaya Adachi他著「Electroluminescence in organic films with three-layer structure」、Japanese Journal of Applied Physics、第27巻、第2号、第L269-L271頁、1988年2月

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0006】

20

本発明の目的は、製造が容易な、光抽出量の高いカスケード式OLEDを提供することにある。

本発明の別の目的は、コストが低く、しかも製品の歩留りが高いカスケード式OLEDを提供することにある。

【課題を解決するための手段】

【0007】

上述した目的は、

a) アノード、

b) カソード、

c) 該アノードと該カソードの間に配置された複数の有機電場発光ユニットであって、少なくとも正孔輸送層、電子輸送層および該正孔輸送層と該電子輸送層との間に形成された電場発光帯域を含み、かつ、隣り合う該電場発光帯域の間の物理的間隔が90nmより大である有機電場発光ユニット、ならびに

d) 各隣接有機電場発光ユニット間に配置された連結ユニットであって、順にn型ドーフト有機層およびp型ドーフト有機層を含むことにより透明なp-n接合構造を形成し、かつ、該ドーフト有機層の各々が10Ω-cmより高い抵抗率を有する連結ユニットを含んで成るカスケード式有機電場発光デバイスによって達成される。

【発明の効果】

【0008】

本発明による有利な効果は、隣り合う電場発光帯域の間の物理的間隔を調整することにより、カスケード式OLEDを光抽出量が高くなるように機能させることができる点にある。さらなる特徴は、ドーフト有機p-n接合構造の厚さを調整することにより、隣り合う電場発光帯域の間の物理的間隔を、放出分光範囲内の透明性および駆動電圧を有意に変えることなく、変更することができる点にある。

40

【0009】

本発明による別の有利な効果は、ドーフト有機p-n接合構造でカスケード式OLEDを機能させることができるので、製造工程が簡略化される点にある。

本発明による別の有利な効果は、ドーフト有機p-n接合構造でカスケード式OLEDを機能させることができるので、製造コストが削減され、かつ、製品の歩留りが高くなる点にある。

50

## 【 0 0 1 0 】

本発明による別の有利な効果は、カスケード式OLEDが、従来型の非カスケード式OLEDと比べ顕著に高い輝度効率を提供する点にある。

本発明による別の有利な効果は、カスケード式OLEDが、従来型OLEDと同一の電流で動作させた場合に明るさが向上する点にある。

## 【 0 0 1 1 】

本発明による別の有利な効果は、カスケード式OLEDが、従来型OLEDと同一の輝度で動作させた場合に寿命が延びる点にある。

本発明による別の有利な効果は、単一の電源を用い2本の電気バス導体でデバイスを外部回路と接続するだけでカスケード式OLEDを動作させることができる点にある。このため、デバイスの構成が、従来技術において報告されているものよりも著しく簡素化される。

## 【 0 0 1 2 】

本発明による別の有利な効果は、カスケード式OLEDが、発光色の異なる複数の有機電場発光ユニットを適宜混合することにより調整された発光色を有することができる点にある。

本発明による別の有利な効果は、高効率白色電場発光を得ることができる点にある。

本発明による別の有利な効果は、カスケード式OLEDをランプにおいて有効利用できる点にある。

## 【発明を実施するための最良の形態】

## 【 0 0 1 3 】

本発明は、デバイス内の連結ユニットの特性を規定することにより、カスケード式OLEDの性能を一段と向上させるものである。

一般的デバイス構成

図1に本発明によるカスケード式OLED100を示す。このカスケード式OLEDはアノード110及びカソード140を有し、その少なくとも一方は透明である。該アノードと該カソードとの間にはN個の有機ELユニット120が配置されている。ここで、Nは1より大なる整数である。これらの有機ELユニットは、相互に、そしてアノード及びカソードに対し、直列的に接続されており、120.1～120.Nの符号が付けられている。ここで、120.1は第1番目のELユニット（アノードに隣接）であり、また120.Nは第N番目のユニット（カソードに隣接）である。用語「ELユニット120」は、本発明において120.1～120.Nで称されるELユニットのいずれをも表す。Nが2より大なる場合、アノードにもカソードにも隣接しない有機ELユニットが存在することになり、これらを中間有機ELユニットと称することができる。隣接する2つの有機ELユニット間には連結ユニット130が配置されている。N個の有機ELユニットには全部でN-1個の連結ユニットが組み合わされており、それらに130.1～130.(N-1)の符号を付ける。連結ユニット130.1は有機ELユニットの120.1と120.2との間に配置され、そして連結ユニット130.(N-1)は有機ELユニットの120.(N-1)と120.Nとの間に配置される。用語「連結ユニット130」は、本発明において130.1～130.(N-1)で称される連結ユニットのいずれをも表す。カスケード式OLED100は、電気導体160を介して電源150に外部接続される。

## 【 0 0 1 4 】

カスケード式OLED100は、一对の接触電極であるアノード110とカソード140との間に、アノード110がカソード140よりも正電位となるように電源150から電位差を印加することにより動作する。この外部印加電位差は、N個の有機ELユニット間に、各ユニットの電気抵抗に比例して分布する。カスケード式OLEDを差し渡す電位差により、アノード110から正孔（正電荷）が第1番目の有機ELユニット120.1に注入され、またカソード140から電子（負電荷）が第N番目の有機ELユニット120.Nに注入される。同時に、各連結ユニット130.1～130.(N-1)において電子及び正孔が発生し、それらから分離される。例えば、連結ユニット130.(N-1)においてこのように発生した電子は、アノードに向かい、隣接有機ELユニット120.(N-1)に注

入される。同様に、連結ユニット130. (N-1)において発生した正孔は、カソードに向かい、隣接有機ELユニット120. Nに注入される。その後、これらの電子と正孔は、その対応する有機ELユニットにおいて再結合して光を発生させ、これが当該OLEDの透明電極（複数可）を介して観察される。換言すれば、カソードから注入された電子が第N番目の有機ELユニットから第1番目の有機ELユニットへとエネルギー的に流れ落ち、各有機ELユニットにおいて光を放出する。したがって、本発明においては、「スタック型OLED」の代わりに、用語「カスケード式OLED」を使用することが好適である。

【0015】

#### 具体的デバイス構成

##### 有機ELユニット

10

当該技術分野では、本発明の有機ELユニットとして使用することができる多くの有機EL多層構造体が知られている。これらには、HTL/ETL、HTL/LEL/ETL、HIL/HTL/LEL/ETL、HIL/HTL/LEL/ETL/EIL、HIL/HTL/電子阻止層又は正孔阻止層/LEL/ETL/EIL、HIL/HTL/LEL/正孔阻止層/ETL/EILが含まれる。カスケード式OLEDの各有機ELユニットは、他の有機ELユニットと同一の又は異なる層構造体を有することができる。アノードに隣接する第1番目の有機ELユニットの層構造はHIL/HTL/LEL/ETLであることが好ましく、カソードに隣接する第N番目の有機ELユニットの層構造はHTL/LEL/ETL/EILであることが好ましく、そして中間有機ELユニットの層構造はHTL/LEL/ETLであることが好ましい。ELユニットのいずれにおいても、HTLとETLの間、ETLの内部またはLELの内部に、電場発光帯域が形成され得る。典型的には、電場発光帯域の厚さは5nm~35nmの範囲内にある。本発明は、電場発光帯域の厚さを、HTL/LEL界面を起点としLELの内部を終点とする10nmに画定することが好ましい。

20

【0016】

有機ELユニット120の有機層は、いずれも当該技術分野で知られている低分子OLED材料もしくは高分子LED材料またはこれらの組合せから形成することができる。カスケード式OLEDに含まれる各有機ELユニットの対応する有機層は、他の対応する有機層と同一であっても異なってもよい。有機ELユニットの一部が高分子型であり、その他のユニットが低分子型である、ということも可能である。

【0017】

各有機ELユニットは、性能が向上するように、または所望の特性、例えば、OLED多層構造体を通る透光性、駆動電圧、輝度効率、発光色、製造適性、デバイス安定性、等を実現するように、選定することができる。

30

【0018】

カスケード式OLEDについて駆動電圧を最低化するためには、電場発光効率を損ねない範囲で可能な限り各有機ELユニットを薄くすることが望まれる。各有機ELユニットの厚さを500nm未満とすることが好ましく、これを2~200nmの範囲内にすることが一層好ましい。また、有機ELユニット内の各層の厚さを200nm以下とすることが好ましく、これを0.1~100nmの範囲内にすることが一層好ましい。

【0019】

カスケード式OLEDにおける有機ELユニットの数は、原則的には2以上である。カスケード式OLEDにおける有機ELユニットの数が、輝度効率（単位cd/A）を向上させ、又は最大化するような数であることが好ましい。ランプ用途の場合、有機ELユニット数を、電源の最大電圧に従い決定することができる。

40

【0020】

##### 連結ユニット

知られているように、従来型のOLEDは、アノードと、有機媒体と、カソードとで構成されている。本発明におけるカソード式OLEDは、アノードと、複数の有機ELユニットと、複数の連結ユニットと、カソードとで構成されており、該連結ユニットが本カスケード式OLEDにおける新規な特徴となる。

【0021】

50



カスケード式OLEDを効率的に機能させるためには、有機ELユニット及び連結ユニットを構成する層の光学的透明性を可能な限り高くして、当該有機ELユニット内で発生した輻射線を当該デバイスから放出させることが必要である。有機ELユニットを構成する層は、一般に当該ELユニットで発生する輻射線に対して透光性であるため、それらの透明性がカスケード式OLEDを構築するに際し問題となることは一般にはない。しかしながら、個々の有機ELユニットを接続するための連結ユニットまたは中間電極として金属、合金または他の無機化合物を使用する場合には、高い透明性を得ることが困難となる。単純計算によると、各連結ユニットの光透過率が70%であるとする、カスケード式OLEDは、デバイスのELユニット数に関わらず電場発光効率が従来型デバイスの2倍以上になることはあり得ないため、十分な利益を得ることができない。連結ユニットを構成する層を、特定の有機材料および適切なn型またはp型のドーパントから構築するならば、その光透過率を90%より高くすることは容易である。

10

## 【0022】

カスケード式OLEDを効率的に機能させるための別の要件として、連結ユニットは、隣接する2つの有機ELユニットの電子輸送層に電子を注入し、かつ、正孔輸送層に正孔を注入することが必要である。しかしながら、本発明においては、n型ドーフト有機層とp型ドーフト有機層の両方を含む連結ユニットを使用することが好ましい。

## 【0023】

したがって、隣接有機ELユニット間に設けられる連結ユニットは、光学的透明性を損なうことなく該隣接有機ELユニットへ効率的に電子及び正孔を注入することが要求されるため、きわめて重要である。連結ユニットの層構造を図2に示す。連結ユニットは、順に、n型ドーフト有機層131およびp型ドーフト有機層132を含んで成る。n型ドーフト有機層131は、有機ELユニットのアノード側にあるETLに隣接し、そしてp型ドーフト有機層132は、有機ELユニットのカソード側にあるHTLに隣接する。n型ドーフト有機層は、隣接する電子輸送層に効率的に電子を注入するように選ばれる。p型ドーフト有機層は、隣接する正孔輸送層に効率的に正孔を注入するように選ばれる。当該ドーフト有機層は、どちらもスペクトルの可視領域において90%より高い光透過率を有することが必要である。さらに、連結ユニットは有機材料を含むので、その加工製法を有機ELユニットの加工製法と同一にすることができる。好ましくは、カスケード式OLEDのすべての有機材料の付着について、熱蒸発法を使用する。

30

## 【0024】

n型ドーフト有機層とは、当該層が導電性であり、かつ、その電荷担体が主として電子であることを意味する。当該導電性は、ドーパントからホスト材料へ電子が移動する結果として電荷移動錯体が形成されることによって付与される。電子をホスト材料へ供与する際の当該ドーパントの濃度及び有効性に依存して、当該層の導電性は大きさが数オーダー変化し得る。同様に、p型ドーフト有機層とは、当該層が導電性であり、かつ、その電荷担体が主として正孔であることを意味する。当該導電性は、ドーパントからホスト材料へ正孔が移動する結果として電荷移動錯体が形成されることによって付与される。正孔をホスト材料へ供与する際の当該ドーパントの濃度及び有効性に依存して、当該層の導電性は大きさが数オーダー変化し得る。しかしながら、本発明においては、画素クロストークを発生させず、しかも有機連結ユニットの製造に画素化シャドーマスクを使用しなくてもよいように、連結ユニットに含まれるドーフト有機層の各層が $10\Omega\cdot\text{cm}$ より高い抵抗率を有することが必要である。したがって、製造工程の簡素化および生産速度の向上が可能となる。

40

## 【0025】

実施例に示すように、連結ユニットが非ドーフトn型有機層および非ドーフトp型有機層からなる場合には、光学的透過性にとっては良好であるが、このような連結ユニットでは有機ELユニットに対して電子または正孔を効率的に注入することができない。連結ユニットが10nmより厚くなると、当該連結ユニットから有機ELユニットへ注入され得る電子がほとんどなくなるので、このような連結ユニットはカスケード式OLEDにおいて実用的

50

ではない。

【 0 0 2 6 】

各連結ユニットにおけるn型ドーフト有機層は、ホスト有機材料及び少なくとも1種のn型ドーパントを含む。n型ドーフト有機層に含まれるホスト材料は、低分子材料もしくは高分子材料又はそれらの組合せを含む。このホスト材料が電子輸送を支援し得ることが好ましい。各連結ユニットにおけるp型ドーフト有機層は、ホスト有機材料及び少なくとも1種のp型ドーパントを含む。当該ホスト材料は、低分子材料もしくは高分子材料又はそれらの組合せを含む。このホスト材料が正孔輸送を支援し得ることが好ましい。一般に、n型ドーフト有機層のホスト材料とp型ドーフト有機層のホスト材料とは、伝導の種類が異なるため、異なるものとなる。しかしながら、場合によって、有機材料の中には、n型ドーフト有機層又はp型ドーフト有機層のいずれにおいてもホストとして使用できるものがある。こうした材料は正孔又は電子のどちらの輸送も支援することができる。適当なn型ドーパント又はp型ドーパントをドーピングすると、当該ドーフト有機層は、それぞれ電子輸送性又は正孔輸送性を主に示すようになる。n型又はp型のドーピング濃度は、0.01~20体積%の範囲内にすることが好ましい。各連結ユニットの全体厚は、1~400nm、好ましくは約1~200nm、の範囲内である。連結ユニットにおけるn型ドーフト有機層とp型ドーフト有機層との厚さ比は、1:10~10:1、好ましくは1:1~1:5、の範囲内である。

10

【 0 0 2 7 】

従来型のOLEDデバイスに使用されている電子輸送性材料が、n型ドーフト有機層のホスト材料として有用な種類を代表する。好適な材料は、オキシシン（通称8-キノリノール又は8-ヒドロキシキノリン）それ自体のキレートをはじめとする金属キレート化オキシノイド系化合物、例えばトリス（8-ヒドロキシキノリン）アルミニウム、である。他の材料として、Tangの米国特許第4356429号明細書に記載されている各種ブタジエン誘導体、Van Slykeらの米国特許第4539507号明細書に記載されている各種複素環式蛍光増白剤、トリアジン、ヒドロキシキノリン誘導体、及びベンズアゾール誘導体が挙げられる。また、シロール誘導体、例えば、村田ら（Applied Physics Letters, 80, 189, 2002）が報告した2,5-ビス（2',2''-ビピリジン-6-イル）-1,1-ジメチル-3,4-ジフェニルシラシクロペンタジエンも、有用なホスト材料である。

20

【 0 0 2 8 】

連結ユニットのn型ドーフト有機層においてn型ドーパントとして使用される材料には、仕事関数が4.0eV未満である金属又は金属化合物が含まれる。特に有用なドーパントとして、アルカリ金属、アルカリ金属化合物、アルカリ土類金属及びアルカリ土類金属化合物が挙げられる。用語「金属化合物」には、有機金属錯体、金属有機塩並びに無機の塩、酸化物及びハロゲン化合物が包含される。含金属n型ドーパントの種類の中では、特に、Li, Na, K, Rb, Cs, Mg, Ca, Sr, Ba, La, Ce, Sm, Eu, Tb, Dy又はYb及びこれらの無機化合物又は有機化合物が有用である。また、連結ユニットのn型ドーフト有機層においてn型ドーパントとして使用される材料には、電子供与性が強い有機還元剤も含まれる。「電子供与性が強い」とは、当該有機ドーパントが、当該ホストとの電荷移動錯体を形成するため当該ホストに対して少なくとも一部の電子的電荷を供与できなければならないことを意味する。有機分子の非限定例として、ビス（エチレンジチオ）-テトラチアフルバレン（BEDT-TTF）、テトラチアフルバレン（TTF）及びそれらの誘導体は挙げられる。高分子ホストの場合には、当該ドーパントは、上記のいずれであってもよく、また当該ホストに対して、副次成分として、分子レベルで分散される又は共重合される材料であってもよい。

30

40

【 0 0 2 9 】

従来型のOLEDデバイスに使用されている正孔輸送性材料が、p型ドーフト有機層のためのホスト材料として有用な種類を代表する。好適な材料として、少なくとも一つが芳香族環の環員である炭素原子にのみ結合している3価窒素原子を1個以上含有する芳香族第三アミンが挙げられる。一つの形態として、芳香族第三アミンはアリールアミン、例えば、

50

モノアリールアミン、ジアリールアミン、トリアリールアミン又は高分子アリールアミンであることができる。1以上のビニル基で置換された、及び／又は少なくとも一つの活性水素含有基を含む、その他の好適なトリアリールアミンが、Brantleyらの米国特許第3567450号及び同第3658520号明細書に記載されている。より好ましい種類の芳香族第三アミンは、Van Slykeらの米国特許第4720432号及び同第5061569号明細書に記載されているような、2以上の芳香族第三アミン部分を含むものである。非限定例として、N,N'-ジ(ナフタレン-1-イル)-N,N'-ジフェニル-ベンジジン(NPB)、N,N'-ジフェニル-N,N'-ビス(3-メチルフェニル)-1,1'-ビフェニル-4,4'-ジアミン(TPD)、及びN,N,N',N'-テトラナフチル-ベンジジン(TNB)が挙げられる。

【0030】

10

連結ユニットのp型ドーフト有機層においてp型ドーパントとして使用される材料には、電子求引性が強い酸化剤が含まれる。「電子求引性が強い」とは、当該有機ドーパントが、当該ホストとの電荷移動錯体を形成するため当該ホストから一部の電子的電荷を受容できなければならないことを意味する。非限定例の一部として、2,3,5,6-テトラフルオロ-7,7,8,8-テトラシアノキノジメタン(F<sub>4</sub>-TCNQ)その他TCNQの誘導体のような有機化合物、及びヨウ素、FeCl<sub>3</sub>、FeF<sub>3</sub>、SbCl<sub>5</sub>その他の金属ハロゲン化合物の一部のような無機酸化剤が挙げられる。高分子ホストの場合には、当該ドーパントは、上記のいずれであってもよく、また当該ホストに対して、副次成分として、分子レベルで分散される又は共重合される材料であってもよい。

【0031】

20

n型又はp型のどちらのドーフト有機層のホストにも使用することができる材料の例として、米国特許第5972247号明細書に記載されている各種アントラセン誘導体、4,4'-ビス(9-ジカルバゾリル)-ビフェニル(CBP)のような特定のカルバゾール誘導体、及び米国特許第5121029号明細書に記載されている4,4'-ビス(2,2'-ジフェニルビニル)-1,1'-ビフェニルのようなジスチルアアリーレン誘導体が挙げられるが、これらに限定はされない。

【0032】

#### 光抽出量の改良

カスケード式OLEDには2以上の有機ELユニットが含まれるので、LELからの直接ビームと反射電極からの反射ビームとの間の2重経路(dual-path)光学干渉を考慮することによって、デバイスからの光抽出量が改良されるように良好な光学設計を行うことが重要である。各有機ELユニットに含まれる電場発光帯域と反射性電極との間の光学距離を調整することにより、光抽出量を高めることができる。

30

本発明において、有機薄膜の光学厚さ「s(i)」は「d(i)」と「n(i)」の積として定義される。

【0033】

【数1】

$$s(i) = d(i)n(i)$$

(方程式1)

40

【0034】

上式中、d(i)は第i番目の有機薄膜の物理的厚さであり、そしてn(i)は第i番目の有機薄膜の特定発光波長に対応する屈折率である。

k層の有機薄膜を有する第j番目のELユニットにおいて、光学厚「s<sub>j</sub>」は光学厚「s(i)」の合計となる。

【0035】

【数 2】

$$s_j = \sum_{i=1}^k s(i) = \sum_{i=1}^k d(i)n(i) \quad (\text{方程式 2})$$

【0036】

上式中、「i」は、i = 1 から i = k までの層指数である。

10

同様に、1 層の有機薄膜を有する第 j 番目の連結ユニットにおいて、光学厚「s<sub>j</sub>」は光学厚「s(i)」の合計となる。

【0037】

【数 3】

$$s_j = \sum_{i=1}^l s(i) = \sum_{i=1}^l d(i)n(i) \quad (\text{方程式 3})$$

20

【0038】

上式中、「i」は、i = 1 から i = l までの層指数である。

各有機ELユニットに含まれる電場発光帯域と反射性電極との間の光学距離を計算するため、電場発光帯域の中間に位置する「発光中心面」と呼ばれる位置を定義する。さらに本発明は、発光中心面からその隣接する最短のHTL/LEL界面位置までの物理的距離を「p」と定義する。したがって、当初の第 q 番目の発光中心面からその第 q 番目の反射性電極側の端部までの光学厚は L<sub>q</sub> と定義される。第 q 番目のELユニットがHTL/LEL/ETLからなるものとする、L<sub>q</sub> は

$$L_q = [d(\text{LEL}) - p] n(\text{LEL}) + d(\text{ETL}) n(\text{ETL})$$

(上式中、p は当該電場発光帯域の厚さの半分に等しい。) と表現することができる。

30

【0039】

第 q 番目の電場発光帯域から反射性電極までの光学距離「S<sub>q</sub>」は、発光中心面と反射性電極の間の光ビームが通過するすべての層の光学厚 s(i, j) の合計となる。S<sub>q</sub> は 3 つの項目の合計として表現される。

【0040】

【数 4】

$$S_q = L_q + \sum_{j=q+1}^N \sum_{i=1}^k d(i, j)n(i, j) + \sum_{j=q+1}^{N-1} \sum_{i=1}^l d(i, j)n(i, j) \quad (\text{方程式 4})$$

40

【0041】

上式中、「i」は、各ELユニット内では i = 1 から i = k までの層指数であり、また各連結ユニット内では i = 1 から i = l までの層指数である。「j」は、カスケード式OLEDにおいて、ELユニットについては j = q + 1 から j = N までの指数であり、また連結ユニットについては j = q + 1 から j = (N - 1) までの指数である。d(i, j) は、第 j 番目の連結ユニットまたは第 j 番目のELユニットにおける第 i 番目の有機層の物理的厚さである。n(i, j) は、第 j 番目の連結ユニットまたは第 j 番目のELユニットにおける

50

第 i 番目の有機層の屈折率である。本発明における実施例の便宜上の記述として、有機層の名称を使用して「i」指数を置き換えることができる。

【 0 0 4 2 】

光抽出量を最適化するため、第 q 番目のELユニットの発光中心面と反射性電極との間の光学距離は、下記の方程式に合致すべきである。

【 0 0 4 3 】

【数 5】

$$S_q = L_q + \sum_{j=q+1}^N \sum_{i=1}^k d(i, j) n(i, j) + \sum_{j=q+1}^{N-1} \sum_{i=1}^l d(i, j) n(i, j) = (2m_q + \eta) \lambda(q) / 4 = S_{q,0}$$

10

(方程式 5)

【 0 0 4 4 】

上式中、 $S_{q,0}$  は、第 q 番目のELユニットの発光中心面と反射性電極との間の最適光学距離を表す。 $m_q$  は 0、1、2、3 又はこれ以上である整数であり、 $\lambda(q)$  は第 q 番目のELユニットにおける発光層のピーク発光波長であり、そして  $\eta$  は反射性電極で反射された後の光波位相の変化によって決まる係数である。

【 0 0 4 5 】

20

【数 6】

$$\eta = \Phi / 180$$

(方程式 6)

【 0 0 4 6 】

上式中、 $\Phi$  は反射性電極で反射された後の光波位相シフトである。 $\eta$  は、電極材料と接触有機材料との双方の屈折率に基いて算出してもよいし、最適光抽出量を示す従来型参照 OLED から実験的に概算してもよい。 $\eta$  は 0.6 ~ 1.0 の範囲内にあることが典型的である。

30

【 0 0 4 7 】

図 3 に、カスケード式 OLED に存在する 2 重経路干渉を示す。カスケード式 OLED 2 0 0 は、電極 2 4 0 が反射性電極であり、かつ、電極 2 1 0 が透過性基板 2 5 0 上の透過性電極であることを除き、カスケード式 OLED 1 0 0 と同等である。デバイス内で発生した光は、透過性電極 2 1 0 および透過性基板 2 5 0 を通してのみ出ていくことができる。各電場発光帯域から放出された光は、2 重経路を通り、デバイスを出ていく。一例として、図 3 に、第 2 番 EL ユニット 1 2 0 . 2 および第 (N-1) 番 EL ユニット 1 2 0 . (N-1) の電場発光帯域から放出される光の 2 重経路を示す。EL ユニット 1 2 0 . 2 の場合、反射性電極 2 4 0 に向けて波長  $\lambda(2)$  で移動する光ビームは、光学距離  $S_2$  を移動した後に反射性電極で反射される。 $S_2$  が要件  $(2m_2 + \eta) \times \lambda(2) / 4$  を満たす場合には、この EL ユニットから、最適化された光抽出量を得ることができる。同様に、EL ユニット 1 2 0 . (N-1) の場合、反射性電極 2 4 0 に向けて波長  $\lambda(N-1)$  で移動する光ビームは、光学距離  $S_{N-1}$  を移動した後に反射性電極で反射される。 $S_{N-1}$  が要件  $(2m_{N-1} + \eta) \times \lambda(N-1) / 4$  を満たす場合には、この EL ユニットから、最適化された光抽出量を得ることができる。このプロセスに従い、カスケード式 OLED 2 0 0 に含まれる各 EL ユニットからの光抽出量を、方程式 5 により、既知値  $\eta$ 、既知値  $\lambda$  および特定値  $m$  を用いて、最適化することができる。

40

【 0 0 4 8 】

50

反射性電極 2 4 0 に対する EL ユニットの物理的位置に従い、第 q 番目の EL ユニットの物理的位置が近くなるほど、 $S_{q,0}$  は小さくなる。さらに、デバイスの現実的観点から、有機材料を節約し、かつ、駆動電圧を低下させるため、好ましくは  $S_{q,0}$  または  $m_q$  を可能な限り小さくなるように選定すべきであり、同時に、要件  $S_{q+1,0} > S_{q,0} > S_{q+1,0}$  を満たすべきである。

カスケード式 OLED 2 0 0 に含まれる EL ユニットの各々が同一波長  $\lambda$  の光を放出する場合

【 0 0 4 9 】

【 数 7 】

10

$$m_q = N - q$$

( 方程式 7 )

【 0 0 5 0 】

として選択することができ、そして方程式 5 は

【 0 0 5 1 】

【 数 8 】

20

$$S_{q,0} = (2 \times (N - q) + \eta) \times \lambda / 4$$

( 方程式 8 )

【 0 0 5 2 】

として特定することができる。第 N 番目の EL ユニットの物理的位置については、 $S_{N,0} = \eta \times \lambda / 4$  であり、また第 1 番目の EL ユニットの物理的位置については、 $S_{1,0} = (2 \times (N - 1) + \eta) \times \lambda / 4$  である。本発明において、 $\eta$  は、従来型の参照用 OLED から実験的に概算される。

【 0 0 5 3 】

層厚、屈折率および反射性電極と接触有機層の界面状態の決定には変動があり得ることを考慮すると、第 q 番目の EL ユニットの当初発光中心面と反射性電極との間の最適光学距離は、 $S_{q,0} = 0.8 \times [(2 m_q + \eta) \times \lambda (q) / 4]$  から  $S_{q,0} = 1.2 \times [(2 m_q + \eta) \times \lambda (q) / 4]$  の範囲内に、より便利には、 $S_{q,0} = 0.8 \times [(2 m_q + 1) \times \lambda (q) / 4]$  から  $S_{q,0} = 1.2 \times [(2 m_q + 1) \times \lambda (q) / 4]$  の範囲内にあることができる。したがって、第 q 番目の EL ユニットの当初発光中心面と反射性電極との間の最適な物理的厚さを計算することができる。

【 0 0 5 4 】

カスケード式 OLED 2 0 0 において隣接する 2 つの EL ユニットの物理的位置が同一波長  $\lambda$  の光を放出する場合、隣接する電場発光帯域間の最適光学厚は下記方程式を満たす。

【 0 0 5 5 】

【 数 9 】

30

40

$$S_{q+1,0} - S_{q,0} = (2 \times (N - q + 1) + \eta) \times \lambda / 4 - (2 \times (N - q) + \eta) \times \lambda / 4 = \lambda / 2$$

( 方程式 9 )

【 0 0 5 6 】

4 0 0 n m ~ 8 0 0 n m の可視スペクトル範囲では、同一波長  $\lambda$  の隣接する電場発光帯

50

域間の最適光学厚は200nm～400nmの範囲内にある。カスケード式OLEDに用いられる有機材料の屈折率は1.5～2.2の範囲内にあるため、隣接する電場発光帯域間の最適な物理的間隔（物理的厚さ）は90nmより大となるべきである。カスケード式OLED200において隣接する2つのELユニットが異なる波長の光を放出する場合にも、隣接する電場発光帯域間の最適な物理的間隔は、現実のデバイス構造において実施可能な層厚を考慮することにより、90nmより大となるべきである。

【0057】

最適光学距離は、ELユニットの厚さまたは連結ユニットの厚さのいずれを変更することによっても調整することが可能である。連結ユニットにおける各ドープ有機層は、ELユニットにおけるそれよりもバルク抵抗が比較的低いので、光学距離の調整は、ELユニットを最小厚に維持しつつ、連結ユニットの厚さを、または、必要に応じて、連結ユニットの屈折率を、変更することによって実施することが有利である。

【0058】

#### 共通デバイス構成

##### 基板

本発明のカスケード式OLEDは、カソード又はアノードのいずれが接触していてもよい支持基板の上に設けられることが典型的である。基板に接している電極を、便宜上、底部電極と称する。底部電極をアノードにすることが慣例的であるが、本発明はそのような構成に限定されるものではない。基板は、意図される発光方向に依存して、透光性又は不透明のいずれかであることができる。基板を介してEL発光を観察する場合には透光性が望まれる。このような場合、透明なガラス又はプラスチックが通常用いられる。上部電極を介してEL発光を観察する用途の場合には、底部支持体の透過性は問題とならないため、透光性、吸光性又は光反射性のいずれであってもよい。この場合の用途向け基板には、ガラス、プラスチック、半導体材料、シリコン、セラミックス及び回路基板材料が含まれるが、これらに限定はされない。もちろん、このようなデバイス構成には、透光性の上部電極を提供する必要はある。

【0059】

##### アノード

アノード110は、これを介してEL発光を観察する場合には、当該発光に対して透明又は実質的に透明であることが必要である。本発明に用いられる一般的な透明アノード材料はインジウム錫酸化物（ITO）、インジウム亜鉛酸化物（IZO）及び酸化錫であるが、例示としてアルミニウム又はインジウムをドープした酸化亜鉛、マグネシウムインジウム酸化物及びニッケルタングステン酸化物をはじめとする他の金属酸化物でも使用することができる。これらの酸化物の他、窒化ガリウムのような金属窒化物、セレン化亜鉛のような金属セレン化物、及び硫化亜鉛のような金属硫化物をアノードとして使用することもできる。カソード電極を介してのみEL発光を観察する用途の場合には、アノードの透過性は問題とならず、透明、不透明又は反射性を問わずいずれの導電性材料でも使用することができる。このような用途向けの導体の例として、金、イリジウム、モリブデン、パラジウム及び白金が挙げられるが、これらに限定はされない。典型的なアノード材料は、透過性であってもそうでなくても、4.0eVより高い仕事関数を有する。望ましいアノード材料は、一般に、蒸発法、スパッタ法、化学的気相成長（CVD）法又は電気化学法のような適当な手段のいずれかによって付着される。アノードは、周知のフォトリソグラフ法によってパターン化することもできる。必要に応じ、短絡を極力抑え、又は反射性を高めるために、他の層を適用する前にアノードを磨き、その表面粗さを低下させてもよい。

【0060】

##### 正孔注入層（HIL）

常に必要であるわけではないが、第1番目の有機ELユニットに、アノード110と接触するようにHILを設けることがしばしば有用となる。HILは、後続の有機層の薄膜形成性を改良し、かつ、HTLへの正孔注入を促進することにより、カスケード式OLEDの駆動電圧を低下させるのに役立つことができる。HILに用いるのに好適な材料として、米国特許第4

10

20

30

40

50

7 2 0 4 3 2 号明細書に記載されているポルフィリン系化合物、米国特許第 6 2 0 8 0 7 5 号明細書に記載されているプラズマ蒸着フルオロカーボンポリマー、及びある種の芳香族アミン、例えば、m-MTDATA(4,4',4"-トリス[(3-エチルフェニル)フェニルアミノ]トリフェニルアミン)が挙げられるが、これらに限定はされない。米国特許第 6 4 2 3 4 2 9 号明細書に記載されているように、上述した連結ユニットに使用するための p 型ドーフト有機層も、HILに有用となる。有機ELデバイスに有用であることが報告されている別の代替りの正孔注入性材料が、欧州特許出願公開第 0 8 9 1 1 2 1 号及び同第 1 0 2 9 9 0 9 号明細書に記載されている。

【 0 0 6 1 】

#### 正孔輸送層 (HTL)

有機ELユニットのHTLは、芳香族第三アミンのような少なくとも 1 種の正孔輸送性化合物を含む。芳香族第三アミンとは、少なくとも一つが芳香族環の環員である炭素原子にのみ結合している 3 価窒素原子を 1 個以上含有する化合物であると解される。一つの形態として、芳香族第三アミンはアリールアミン、例えば、モノアリールアミン、ジアリールアミン、トリアリールアミン又は高分子アリールアミンであることができる。トリアリールアミン単量体の例が、米国特許第 3 1 8 0 7 3 0 号(Klupfelら)に示されている。1 以上のビニル基で置換された、及び／又は少なくとも一つの活性水素含有基を含む、その他の好適なトリアリールアミンが、Brantleyらの米国特許第 3 5 6 7 4 5 0 号及び同第 3 6 5 8 5 2 0 号に記載されている。

【 0 0 6 2 】

より好ましい種類の芳香族第三アミンは、米国特許第 4 7 2 0 4 3 2 号及び同第 5 0 6 1 5 6 9 号に記載されているような芳香族第三アミン部分を 2 個以上含有するものである。HTLは、芳香族第三アミン化合物の単体又は混合物で形成することができる。有用な芳香族第三アミンを例示する。

【 0 0 6 3 】

- 1,1-ビス(4-ジ-p-トリルアミノフェニル)シクロヘキサン
- 1,1-ビス(4-ジ-p-トリルアミノフェニル)-4-フェニルシクロヘキサン
- 4,4'-ビス(ジフェニルアミノ)クアドリフェニル
- ビス(4-ジメチルアミノ-2-メチルフェニル)-フェニルメタン
- N,N,N-トリ(p-トリル)アミン
- 4-(ジ-p-トリルアミノ)-4'-[4(ジ-p-トリルアミノ)-スチリル]スチルベン
- N,N,N',N'-テトラ-p-トリル-4,4'-ジアミノビフェニル
- N,N,N',N'-テトラフェニル-4,4'-ジアミノビフェニル
- N,N,N',N'-テトラ-1-ナフチル-4,4'-ジアミノビフェニル
- N,N,N',N'-テトラ-2-ナフチル-4,4'-ジアミノビフェニル
- N-フェニルカルバゾール
- 4,4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル
- 4,4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-(2-ナフチル)アミノ]ビフェニル
- 4,4"-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]-p-ターフェニル
- 4,4'-ビス[N-(2-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル
- 4,4'-ビス[N-(3-アセナフテニル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル
- 1,5-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ナフタレン
- 4,4'-ビス[N-(9-アントリル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル
- 4,4"-ビス[N-(1-アントリル)-N-フェニルアミノ]-p-ターフェニル
- 4,4'-ビス[N-(2-フェナントリル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル
- 4,4'-ビス[N-(8-フルオルアンテニル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル
- 4,4'-ビス[N-(2-ピレニル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル
- 4,4'-ビス[N-(2-ナフタセニル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル
- 4,4'-ビス[N-(2-ペリレニル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル
- 4,4'-ビス[N-(1-コロネニル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル

10

20

30

40

50



2,6-ビス(ジ-p-トリルアミノ)ナフタレン  
 2,6-ビス[ジ-(1-ナフチル)アミノ]ナフタレン  
 2,6-ビス[N-(1-ナフチル)-N-(2-ナフチル)アミノ]ナフタレン  
 N,N,N',N'-テトラ(2-ナフチル)-4,4''-ジアミノ-p-ターフェニル  
 4,4'-ビス{N-フェニル-N-[4-(1-ナフチル)-フェニル]アミノ}ビフェニル  
 4,4'-ビス[N-フェニル-N-(2-ピレニル)アミノ]ビフェニル  
 2,6-ビス[N,N-ジ(2-ナフチル)アミン]フルオレン  
 1,5-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ナフタレン  
 4,4',4''-トリス[(3-メチルフェニル)フェニルアミノ]トリフェニルアミン

【0064】

別の種類の有用な正孔輸送性材料として、欧州特許第1009041号明細書に記載されているような多環式芳香族化合物が挙げられる。オリゴマー材料をはじめとする、アミン基を3個以上含有する芳香族第三アミンを使用してもよい。さらに、ポリ(N-ビニルカルバゾール)(PVK)、ポリチオフェン、ポリピロール、ポリアニリン及びPEDOT/PSSとも呼ばれているポリ(3,4-エチレンジオキシチオフェン)/ポリ(4-スチレンスルホネート)のようなコポリマー、といった高分子系正孔輸送性材料を使用することもできる。

【0065】

#### 発光層 (LEL)

米国特許第4769292号及び同第5935721号に詳述されているように、有機ELユニットのLELは発光材料又は蛍光材料を含み、その領域において電子-正孔対が再結合する結果として電場発光が生じる。LELは、単一材料で構成することもできるが、より一般的には、ホスト材料に単一又は複数種のゲスト化合物をドーピングしてなり、そこで主として当該ドーパントから発光が生じ、その発光色にも制限はない。LELに含まれるホスト材料は、電子輸送性材料、正孔輸送性材料、又は正孔-電子再結合を支援する別の材料もしくはその組合せ、であることができる。ドーパントは、通常は高蛍光性色素の中から選ばれるが、リン光性化合物、例えば、国際公開第98/55561号、同第00/18851号、同第00/57676号及び同第00/70655号に記載されているような遷移金属錯体も有用である。ドーパントは、ホスト材料中、0.01~10質量%の範囲内でコーティングされることが典型的である。ホスト材料として、ポリフルオレンやポリビニルアアリーレン(例、ポリ(p-フェニレンビニレン)、PPV)のような高分子材料を使用することもできる。この場合、高分子ホスト中に低分子ドーパントを分子レベルで分散させること、又はホストポリマー中に副次成分を共重合させることによりドーパントを付加すること、が可能である。

【0066】

ドーパントとしての色素を選定するための重要な関係は、電子エネルギーバンドギャップの対比である。ホストからドーパント分子へのエネルギー伝達の効率化を図るためには、当該ドーパントのバンドギャップがホスト材料のそれよりも小さいことが必須条件となる。リン光性発光体の場合には、ホストの三重項エネルギー準位が、ホストからドーパントへのエネルギー移動を可能ならしめるに十分な高さであることも重要である。

【0067】

有用性が知られているホスト及び発光性分子として、米国特許第4769292号、同第5141671号、同第5150006号、同第5151629号、同第5405709号、同第5484922号、同第5593788号、同第5645948号、同第5683823号、同第5755999号、同第5928802号、同第5935720号、同第5935721号及び同第6020078号明細書に記載されているものが挙げられるが、これらに限定はされない。

【0068】

8-ヒドロキシキノリン(オキシシン)及び類似の誘導体の金属錯体は、電場発光を支援することができる有用なホスト化合物の一種である。以下、有用なキレート化オキシノイド系化合物の例を示す。

10

20

30

40

50

C0-1: アルミニウムトリソキシシ [別名、トリス(8-キノリノラト)アルミニウム(III)]

C0-2: マグネシウムビスオキシシ [別名、ビス(8-キノリノラト)マグネシウム(II)]

C0-3: ビス[ベンゾ{f}-8-キノリノラト]亜鉛(II)

C0-4: ビス(2-メチル-8-キノリノラト)アルミニウム(III)- $\mu$ -オキソ-ビス(2-メチル-8-キノリノラト)アルミニウム(III)

C0-5: インジウムトリソキシシ [別名、トリス(8-キノリノラト)インジウム]

C0-6: アルミニウムトリス(5-メチルオキシシ) [別名、トリス(5-メチル-8-キノリノラト)アルミニウム(III)]

C0-7: リチウムオキシシ [別名、(8-キノリノラト)リチウム(I)]

C0-8: ガリウムオキシシ [別名、トリス(8-キノリノラト)ガリウム(III)]

C0-9: ジルコニウムオキシシ [別名、テトラ(8-キノリノラト)ジルコニウム(IV)]

10

[0069]

有用なホスト材料の別の種類として、米国特許第5935721号に記載されている9,10-ジ-(2-ナフチル)アントラセン及びその誘導体のようなアントラセン誘導体、米国特許第5121029号に記載されているジスチリルアリーレン誘導体、並びに2,2',2''-(1,3,5-フェニレン)トリス[1-フェニル-1H-ベンズイミダゾール]のようなベンズアゾール誘導体が挙げられるが、これらに限定はされない。リン光性発光体の場合には、カルバゾール誘導体が特に有用なホストとなる。

[0070]

20

有用な蛍光性ドーパントには、アントラセン、テトラセン、キサントゲン、ペリレン、ルブレン、クマリン、ローダミン、キナクリドン、ジシアノメチレンピラン、チオピラン、ポリメチン、ピリリウム及びチアピリリウムの各化合物の誘導体、フルオレン誘導体、ペリフランテン誘導体、インデノペリレン誘導体、ビス(アジニル)アミンホウ素化合物、ビス(アジニル)メタン化合物並びにカルボスチリル化合物が包含される。

[0071]

#### 電子輸送層 (ETL)

本発明の有機ELユニットのETLを形成するのに用いるのに好ましい薄膜形成性材料は、オキシシ(通称8-キノリノール又は8-ヒドロキシキノリン)それ自体のキレートをはじめとする金属キレート化オキシシノイド系化合物である。このような化合物は、電子の注入及び輸送を助長し、しかも高い性能レベルを示すと共に、薄膜への加工が容易である。オキシシノイド系化合物の例は先に列挙した通り。

30

[0072]

その他の電子輸送性材料として、米国特許第4356429号に記載されている各種ブタジエン誘導体、及び米国特許第4539507号に記載されている各種複素環式蛍光増白剤が挙げられる。ベンズアゾール及びトリアジンもまた有用な電子輸送性材料である。

[0073]

#### 有機電子注入層 (EIL)

常に必要であるわけではないが、第N番目の有機ELユニットに、カソード140と接触するようにEILを設けることがしばしば有用となる。EILは、ETLへの電子注入を促進し、かつ、導電性を高めることで、カスケード式OLEDの駆動電圧を低下させるのに役立つことができる。EILに使用するのに好適な材料は、ドーパントとして強還元剤を含む又は、連結ユニットに使用される上記のn型ドーパント有機層において記載したドーパントとして低仕事関数(<4.0 eV)金属を含む、上記のETLである。有機ELユニットにおいては、後述するように、別の無機電子注入材料が有用となる場合もある。

40

[0074]

#### カソード

発光をアノードのみを介して観察する場合には、本発明に用いられるカソード140は、ほとんどすべての導電性材料を含んでなることができる。望ましい材料は、下部の有機層との良好な接触が確保されるよう良好な薄膜形成性を示し、低電圧での電子注入を促進

50

し、かつ、良好な安定性を有する。有用なカソード材料は、低仕事関数金属 ( $< 4.0 \text{ eV}$ ) 又は合金を含むことが多い。好適なカソード材料の 1 種に、米国特許第 4885221 号明細書に記載されている Mg:Ag 合金 (銀含有率 1 ~ 20 %) を含むものがある。別の好適な種類のカソード材料として、有機層 (例、ETL) に接している薄い無機 EIL に、これより厚い導電性金属層をキャップしてなる二層形が挙げられる。この場合、無機 EIL は低仕事関数の金属又は金属塩を含むことが好ましく、その場合には、当該より厚いキャップ層は低仕事関数を有する必要はない。このようなカソードの一つに、米国特許第 5677572 号明細書に記載されている、LiF 薄層にこれより厚い Al 層を載せてなるものがある。その他の有用なカソード材料のセットとして、米国特許第 5059861 号、同第 5059862 号及び同第 6140763 号明細書に記載されているものが挙げられるが、これらに限定はされない。

10

#### 【0075】

カソードを介して発光を観察する場合には、当該カソードは透明又はほぼ透明でなければならない。このような用途の場合、金属が薄くなければならないか、又は透明導電性酸化物もしくはこれら材料の組合せを使用しなければならない。透光性カソードについては、米国特許第 4885211 号、米国特許第 5247190 号、米国特許第 5703436 号、米国特許第 5608287 号、米国特許第 5837391 号、米国特許第 5677572 号、米国特許第 5776622 号、米国特許第 5776623 号、米国特許第 5714838 号、米国特許第 5969474 号、米国特許第 5739545 号、米国特許第 5981306 号、米国特許第 6137223 号、米国特許第 6140763 号、米国特許第 6172459 号、米国特許第 6278236 号、米国特許第 6284393 号、JP 3234963 号及び欧州特許第 1076368 号に詳しく記載されている。カソード材料は、熱蒸発法、電子ビーム蒸発法、イオンスパッタ法又は化学的気相成長法により付着させることが典型的である。必要な場合には、例えば、マスク介在蒸着法、米国特許第 5276380 号及び欧州特許出願公開第 0732868 号明細書に記載の一体型シャドーマスク法、レーザーアブレーション法及び選択的化学的気相成長法をはじめとする多くの周知の方法により、パターンを形成させてもよい。

20

#### 【0076】

##### 他のデバイス構成

##### 別態様層

30

場合によっては、必要に応じて、有機 EL ユニットの LEL と ETL を、発光と電子輸送の両方を支援する機能を発揮する単一層にすることが可能である。当該技術分野では、ホストとして使用できる HTL に発光性ドーパントを添加してもよいことも知られている。白色発光性 OLED を製造するため、1 又は 2 以上の層に複数のドーパントを添加することができ、例えば、青色発光性材料と黄色発光性材料、シアン色発光性材料と赤色発光性材料又は赤色発光性材料と緑色発光性材料と青色発光性材料を組み合わせることができる。白色発光性デバイスについては、例えば、米国特許第 5683823 号、同第 5503910 号、同第 5405709 号、同第 5283182 号、欧州特許第 1187235 号及び同第 1182244 号に記載されている。

40

#### 【0077】

本発明のデバイスには、当該技術分野で教示されているような追加の層、例えば、電子阻止層又は正孔阻止層を採用することができる。正孔阻止層は、通常、リン光性発光体デバイスの効率を高めるために用いられる。

#### 【0078】

##### 有機層の付着

上述した有機材料は、熱蒸発法のような気相法により適宜付着されるが、流体から、例えば、薄膜形成性を高める任意のバインダーと共に溶剤から付着させてもよい。当該材料がポリマーである場合には、溶剤付着法が有用であるが、その他の方法、例えば、スパッタ法やドナーシートからの熱転写法を採用することもできる。熱蒸発法により付着すべき材料は、例えば、米国特許第 6237529 号明細書に記載されているように、タンタル

50

材料を含むことが多い蒸発「ボート」から気化させることができ、また、最初にドナー支持体上に被覆し、次いで基板に近接させて昇華させてもよい。複数材料の混合物を含む層は、独立した複数の蒸発ボートを利用してもよいし、当該複数材料を予め混合した後単一のボート又はドナーシートからコーティングしてもよい。フルカラー表示装置の場合には、LELを画素化する必要が生じる場合がある。このようなLELの画素化付着は、シャドーマスク、一体式シャドーマスク（米国特許第5294870号）、ドナーシートからの空間画定型感熱色素転写（米国特許第5688551号、同第5851709号及び同第6066357号）並びにインクジェット法（米国特許第6066357号）を用いて行なうことができる。有機ELユニットまたは連結ユニットにおける他の有機層については、必ずしも画素化付着が必要となることはない。

10

【0079】

#### 封入

ほとんどのOLEDデバイスは湿分及び／又は酸素に対して感受性を示すため、窒素又はアルゴンのような不活性雰囲気において、アルミナ、ボーキサイト、硫酸カルシウム、クレー、シリカゲル、ゼオライト、アルカリ金属酸化物、アルカリ土類金属酸化物、スルフェート、金属ハロゲン化物及び金属過塩素酸塩のような乾燥剤と一緒に、封止されることが一般的である。封入法及び乾燥法として、米国特許第6226890号明細書に記載されている方法が挙げられるが、これらに限定はされない。さらに、当該技術分野では、封入用として、SiO<sub>x</sub>、テフロン（登録商標）及び無機／高分子交互層のようなバリア層が知られている。

20

本明細書において引用した特許明細書その他の刊行物の内容全体を本明細書の一部とする。

【実施例】

【0080】

以下の実施例は本発明のさらなる理解のために提供されるものである。簡略化のため、材料及びそれから得られた層を、以下の略号で記載する。

ITO:インジウム錫酸化物；ガラス基板上に透明アノードを形成する際に使用

CF<sub>x</sub>:フルオロカーボン重合体層；ITO上に正孔注入層を形成する際に使用

NPB: N,N'-ジ（ナフタレン-1-イル）-N,N'-ジフェニル-ベンジジン；有機ELユニットの正孔輸送層を形成する際に使用し、また連結ユニットのp型ドーフト有機層を形成する際にホストとして使用

30

Alq:トリス（8-ヒドロキシキノリン）アルミニウム（III）；有機ELユニットの電子輸送層及び発光層の双方を形成する際にホストとして使用し、また連結ユニットのn型ドーフト有機層を形成する際にホストとして使用（下記実施例では、その屈折率を1.73とした。）

C545T: 10-(2-ベンゾチアゾリル)-1,1,7,7-テトラメチル-2,3,6,7-テトラヒドロ-1H,5H,11H(1)ベンゾピラノ(6,7,8-ij)キノリジン-11-オン；ELユニットの発光層に含まれるドーパントとして使用

FeCl<sub>3</sub>: 連結ユニットのp型ドーフト有機層を形成する際にp型ドーパントとして使用

Li: リチウム；連結ユニットのn型ドーフト有機層を形成する際にn型ドーパントとして使用

40

Mg:Ag:容積比10:0.5のマグネシウム：銀；カソードを形成する際に使用

【0081】

製作したすべてのデバイスの電場発光特性を、室温において一定電源及び光度計を使用して評価した。

【0082】

#### 例1（従来型OLED：比較例）

従来型の非カスケード式OLEDを以下のように製作した。市販のガラススクラパーツールを使用して、透明ITO導電層を被覆した厚さ約1.1mmのガラス基板を洗浄して乾燥した。ITOの厚さは約42nmであり、ITOのシート抵抗は約68Ω/□である。次いで、そのIT

50

0面を酸化的プラズマで処理して当該表面をアノードとして状態調節した。きれいなITO面上に、RFプラズマ処理チャンバ内でCHF<sub>3</sub>ガスを分解させることにより、HILとして厚さ1nmのCFx層を付着させた。次いで、基板を真空蒸着チャンバ内に移送して、該基板上にその他すべての層を付着させた。下記の層を、約10<sup>-6</sup>Torrの真空下で加熱ポートから昇華させ、下記の順序で付着させた。

- (1)NPBからなる厚さ90nmのHTL
  - (2)AlqホストにC545Tを1.0体積%ドーピングしてなる厚さ20nmのLEL
  - (3)Alqからなる厚さ40nmのETL
  - (4)Mg:Agからなる厚さ約210nmの反射性カソード
- 【0083】

これらの層を付着させた後、封入のため、デバイスを蒸着チャンバからドライボックスに移送した。完成したデバイス構造をITO/CFx/NPB(90)/Alq:C545T(20)/Alq(40)/Mg:Agと表示する。

【0084】

本デバイス(ELユニットは1個だけ)は、LELからのピーク発光波長λ(1)が524nmである。電場発光帯域の厚さは10nmと規定され、その場合pは5nmに等しい。発光中心面とMg:Ag系反射性電極との間の物理的厚さは55nmであり、この値は、本発明者らの他の実験から得られた最適値である。方程式4及び方程式5によると、m<sub>1</sub>を0と選定した場合、ηは以下のように計算することができる。

【0085】

【数10】

$$\eta = 4 \times S_{1,0} / \lambda(1) = 4 \times [s(\text{LEL}, 1) - p + s(\text{ETL}, 1)] \times n(\text{Alq}, 1) / \lambda(1)$$

$$= 4 \times [20 - 5 + 40] \times 1.73 / 524 = 0.726$$

【0086】

この実験値ηを下記実施例で使用する。

本デバイスは、20mA/cm<sup>2</sup>を流すのに約7.0Vの駆動電圧を要した。その輝度は190.5cd/m<sup>2</sup>であり、その輝度効率約9.5cd/Aであった。駆動電圧に対する電流密度(I-V曲線)を図4に、また電流密度に対する輝度効率を図5に示す。

【0087】

## 例2(発明例)

2個のELユニットを具備したカスケード式OLEDを以下のように製作した。市販のガラススクラパーツールを使用して、透明ITO導電層を被覆した厚さ約1.1mmのガラス基板を洗浄して乾燥した。ITOの厚さは約42nmであり、ITOのシート抵抗は約68Ω/□である。次いで、そのITO面を酸化的プラズマで処理して当該表面をアノードとして状態調節した。きれいなITO面上に、RFプラズマ処理チャンバ内でCHF<sub>3</sub>ガスを分解させることにより、HILとして厚さ1nmのCFx層を付着させた。次いで、基板を真空蒸着チャンバ内に移送して、該基板上にその他すべての層を付着させた。下記の層を、約10<sup>-6</sup>Torrの真空下で加熱ポートから昇華させ、下記の順序で付着させた。

【0088】

- (1)透明アノードと第1ELユニットの間のスペーサとしての、NPBからなる厚さ60nmの第1HTL
- (2)NPBからなる厚さ30nmのHTL
- (3)Alqホストに1.0体積%のC545Tをドーピングしてなる厚さ20nmのLEL
- (4)Alqからなる厚さ10nmのETL

[NPB(30)/Alq:C545T(20)/Alq(10)、ELと表示、第1ELユニットを構成]

10

20

30

40

50

(5) Alqホストに 1.2 体積%のLiをドーピングしてなる厚さ 30 nmの n 型ドーフト有機層

(6) NPBホストに 1 体積%のFeCl<sub>3</sub>をドーピングしてなる厚さ 60 nmの p 型ドーフト有機層

[Liドーピング型Alq(30)/FeCl<sub>3</sub>、ドーピング型NPB(60)、CUと表示、第1連結ユニットを構成]

(7) NPBからなる厚さ 30 nmのHTL

(8) Alqホストに 1.0 体積%のC545Tをドーピングしてなる厚さ 20 nmのLEL

(9) Alqからなる厚さ 10 nmのETL

[NPB(30)/Alq:C545T(20)/Alq(10)、ELと表示、第2ELユニットを構成]

(10) 最終ELユニットと反射性カソードの間のスペーサとしての、Alqからなる厚さ 30 nmの最終ETL

(11) Mg:Agからなる厚さ約 210 nmの反射性カソード

【0089】

10

これらの層を付着させた後、封入のため、デバイスを蒸着チャンバからドライボックスに移送した。完成したデバイス構造をITO/CFx/NPB(60)/EL/CU/EL/Alq(30)/Mg:Agと表示する。

【0090】

本カスケード式OLEDにおいて、連結ユニットの抵抗率は10Ω-cmより高く、かつ、光透過率は90%より高い。各LELからのピーク発光波長λは524nmである。方程式4によると、第2ELユニットの発光中心面と反射性Mg:Agカソードとの間の光学距離は、 $S_z = [d(LEL, 2) - p + d(ETL, 2) + d(スペーサ, 2)] \times n(Alq, 2) = [15 - 5 + 10 + 40] \times 1.73 = 95\text{nm}$ となる。方程式8によると、 $S_{opt} = (2 \times (N - q) + \eta) \times \lambda / 4$ となり、そして例1によりηは0.726であるから、最適光学距離 $S_{opt} = \eta \times \lambda / 4 = 0.726 \times 524 / 4 = 95\text{nm}$ となる。したがって、 $S_z = S_{opt}$ となり、すなわち第2ELユニットの発光中心面と反射性Mg:Agカソードとの間の実際の光学距離が最適化された。同様に、第1ELユニットの発光中心面と反射性Mg:Agカソードとの間の光学距離は、 $S_1 = [d(LEL, 1) - p] \times n(Alq, 1) + d(ETL, 1) \times n(Alq, 1) + [d(n-L, 1) \times n(Alq, 1) + d(p-L, 1) \times n(NPB, 1)] + [d(HTL, 2) \times n(NPB, 2) + d(LEL, 2) \times n(Alq, 2) + d(ETL, 2) \times n(Alq, 2)] + [d(スペーサ, 2) \times n(Alq, 2)] = [(20 - 5) \times 1.73 + 10 \times 1.73] + [30 \times 1.73 + 60 \times 1.81] + [30 \times 1.81 + 20 \times 1.73 + 10 \times 1.73] + [30 \times 1.73] = 115 \times 1.73 + 90 \times 1.81 = 362\text{nm}$ となる。方程式8によると、 $S_{opt} = (2 \times (N - q) + \eta) \times \lambda / 4$ となり、そして例1によりηは0.726であるから、最適光学距離 $S_{opt} = (2 + \eta) \times \lambda / 4 = 2.726 \times 524 / 4 = 357\text{nm}$ となる。したがって、 $S_1 = 1.01 \times S_{opt}$ となり、すなわち第1ELユニットの発光中心面と反射性Mg:Agカソードとの間の実際の光学距離が最適化された。さらに、第1ELユニットの発光中心面と第2ELユニットの発光中心面との間の物理的間隔は150nmとなり、これは当該デバイスの光学距離λ/2に相当する。

【0091】

このカスケード式OLEDは、20mA/cm<sup>2</sup>を流すのに14.3Vの駆動電圧を要した。その輝度は4073cd/m<sup>2</sup>、またその輝度効率は約20.4cd/Aとなり、どちらも例1の場合よりも2倍程度高くなった。I-V曲線を図4に示す。電流密度に対する輝度効率を図5に示す。

【0092】

### 例3 (発明例)

3個のELユニットを具備したカスケード式OLEDを例2と同様に製作したが、但し、例2の工程(9)の後に、工程(5)~(9)を1回繰り返すことで連結ユニットとELユニットをもう1個ずつ追加してから工程(10)および(11)を続けた。

これらの層を付着させた後、封入のため、デバイスを蒸着チャンバからドライボックスに移送した。完成したデバイス構造をITO/CFx/NPB(60)/EL/CU/EL/CU/EL/Alq(30)/Mg:Agと表示する。

【0093】

本カスケード式OLEDにおいては、例2の場合と同様に、連結ユニットの抵抗率は10Ω-cmより高く、かつ、光透過率は90%より高い。各LELからのピーク発光波長λは524nmである。 $S_z = S_{opt} = 95\text{nm}$ 、 $S_2 = 1.01 \times S_{opt} = 362\text{nm}$ 、そして $S_1 = 1.01 \times S_{opt}$

40

50

$=1.02 \times 619 = 629 \text{ nm}$ となる。各発光中心面と反射性Mg:Agカソードとの間の光学距離が最適化された。さらに、各発光中心面間の物理的間隔は150nmとなり、これは当該デバイスの光学距離 $\lambda/2$ に相当する。

【0094】

このカスケード式OLEDは、 $20 \text{ mA/cm}^2$ を流すのに約20.0Vの駆動電圧を要した。その輝度は $6381 \text{ cd/m}^2$ 、またその輝度効率 $\eta$ は約 $31.9 \text{ cd/A}$ となり、どちらも例1の場合よりも3倍程度高くなった。I-V曲線を図4に示す。電流密度に対する輝度効率 $\eta$ を図5に示す。

【0095】

#### 例4（比較例）

3個のELユニットを具備したOLEDを例3と同様に製作したが、但し、工程(5)および工程(6)を省略した。このことは、当該デバイスの各ELユニット間に連結ユニットが一切含まれないことを意味する。

これらの層を付着させた後、封入のため、デバイスを蒸着チャンバからドライボックスに移送した。完成したデバイス構造をITO/CFx/NPB(60)/EL/EL/EL/Alq(30)/Mg:Agと表示する。

【0096】

このカスケード式OLEDは、 $20 \text{ mA/cm}^2$ を流すのに約27.0Vの駆動電圧を要した。そのピーク発光波長 $\lambda$ は524nmである。その輝度は $1597 \text{ cd/m}^2$ 、またその輝度効率 $\eta$ は約 $8.0 \text{ cd/A}$ となり、どちらも例1の場合よりも低くなった。I-V曲線を図4に示す。電流密度に対する輝度効率 $\eta$ を図5に示す。

【0097】

例3と比較した場合、例4のデバイスは、全体厚が例3のデバイスより180nm薄いにも関わらず、 $20 \text{ mA/cm}^2$ を流すのに要する駆動電圧が7ボルト高くなる。さらに、その輝度は、例3のデバイスの輝度の3分の1未満である。本デバイスでは、n型ドーフト有機層およびp型ドーフト有機層を含む連結ユニットが設けられていないので、各ELユニット間の連結は、ドーフトされていないn型有機層(Alq層)およびドーフトされていない有機層(NPB層)によって置き換えられている。これらのドーフトされていない層は、ドーフトされていないp-n接合構造を形成する。デバイス性能から、ドーフトされていないp-n接合構造では、ELユニットに対する効率的なキャリア輸送およびキャリア注入が得られないことが示唆される。さらに、ドーフトされた有機p-n接合構造を構成し、かつ、効率的なキャリア注入性を提供する連結ユニットが、カスケード式OLEDにとって極めて重要であることが例証された。

【0098】

#### 例5（発明例）

2個のELユニットを具備したカスケード式OLEDを例2と同様に製作したが、但し、工程(1)における第1HTLの厚さを60nmから135nmへ変更した。

これらの層を付着させた後、封入のため、デバイスを蒸着チャンバからドライボックスに移送した。完成したデバイス構造をITO/CFx/NPB(135)/EL/CU/EL/Alq(30)/Mg:Agと表示する。

【0099】

本カスケード式OLEDにおいては、例2の場合と同様に、連結ユニットの抵抗率は $10 \Omega \cdot \text{cm}$ より高く、かつ、光透過率は90%より高い。各LELからのピーク発光波長 $\lambda$ は524nmである。 $S_2 = S_{2,0} = 95 \text{ nm}$ 、そして $S_1 = 1.01 \times S_{1,0} = 362 \text{ nm}$ となる。各発光中心面と反射性Mg:Agカソードとの間の光学距離が最適化された。さらに、各発光中心面間の物理的間隔は150nmとなり、これは当該デバイスの光学距離 $\lambda/2$ に相当する。

【0100】

このカスケード式OLEDは、 $20 \text{ mA/cm}^2$ を流すのに約17.7Vの駆動電圧を要した。その輝度は $3847 \text{ cd/m}^2$ 、またその輝度効率 $\eta$ は約 $19.2 \text{ cd/A}$ となり、どちらも例1の場合よりも2倍程度高くなった。

10

20

30

40

50

【 0 1 0 1 】

## 例 6 ( 比較例 )

連結ユニットの厚さを変更したことを除き、例 5 と同様に EL ユニットの 2 個具備したカスケード式 OLED を製作した。工程 (5) における Li ドープト Alq 層の厚さを 30 nm から 55 nm へ変更し、かつ、FeCl<sub>3</sub> ドープト NPB 層の厚さを 60 nm から 110 nm へ変更した。本デバイスでは、Alq:Li (55nm) / NPB:FeCl<sub>3</sub> (110nm) (CU2 と表示) が連結ユニットを構成する。

【 0 1 0 2 】

これらの層を付着させた後、封入のため、デバイスを蒸着チャンバからドライボックスに移送した。完成したデバイス構造を IT0/CFx/NPB(135)/EL/CU2/EL/Alq(30)/Mg:Ag と表示する。

【 0 1 0 3 】

本カスケード式 OLED においては、例 5 の場合と同様に、連結ユニットの抵抗率は 10 Ω-cm より高く、かつ、光透過率は 90 % より高い。ピーク発光波長 λ は 524 nm である。S<sub>1</sub> = S<sub>1,0</sub> = 95 nm であるため、第 2 EL ユニットの発光中心面から反射性 Mg:Ag カソードまでの光学距離は最適化されている。しかしながら、S<sub>1</sub> = 1.38 × S<sub>1,0</sub> = 495 nm となり、第 1 EL ユニットの発光中心面から反射性 Mg:Ag カソードまでの光学距離は、最適値から実質的に外れていることが示された。

【 0 1 0 4 】

このカスケード式 OLED は、20 mA/cm<sup>2</sup> を流すのに約 18.0 V の駆動電圧を要した。その輝度は 2037 cd/m<sup>2</sup>、またその輝度効率は約 10.2 cd/A となり、どちらも例 1 の場

【 0 1 0 5 】

実際に、本デバイスにおける 2 枚の発光中心面間の物理的間隔は 225 nm となり、これは当該デバイスの光学距離  $1.5 \times \lambda / 2$  に相当する。2 重経路干渉の挙動によると、第 1 EL ユニットの LEL からの直接ビームと、同一 LEL から発生して Mg:Ag カソードで反射された反射ビームが発光起点を通過する際の反射ビームとの間には、180° の波位相差が存在する。その結果、この干渉により、第 1 EL ユニットの発光寄与分が完全に打ち消されている。したがって、このカスケード式 OLED は、EL ユニットの 2 個具備し、しかも当該デバイスに効率的なキャリア注入性を提供する連結ユニットがあるにも関わらず、第 2 EL ユニットの発光しか得ることができない。本例は、カスケード式 OLED にとって、連結

【 0 1 0 6 】

上記の実施例は、EL ユニットへキャリアを効率的に注入するドープト有機 p-n 接合構造を使用し、かつ、当該デバイス内の光学干渉を慎重に調整することによって、カスケード式 OLED の輝度効率を顕著に向上させ得ることを例証するものである。

【図面の簡単な説明】

【 0 1 0 7 】

【図 1】複数の有機 EL ユニットの有し、その各有機 EL ユニット間に連結ユニットを有する、本発明によるカスケード式 OLED を示す略横断面図である。

【図 2】本発明によるカスケード式 OLED において有用な、n 型ドープト有機層および p 型ドープト有機層を有する連結ユニットを示す略横断面図である。

【図 3】電場発光帯域の一部からの直接ビームと反射ビームとの間の 2 重経路干渉を示す、本発明によるカスケード式 OLED を示す略横断面図である。

【図 4】室温で測定された、本発明および対照デバイスについて駆動電圧に対する電流密度を示すグラフである。

【図 5】室温で測定された、本発明および対照デバイスについて電流密度に対する輝度効率を示すグラフである。

【 0 1 0 8 】

なお、図 1 ~ 図 3 は、個々の層が極めて薄く、しかも各種層の厚さの差が非常に大きい

10

20

30

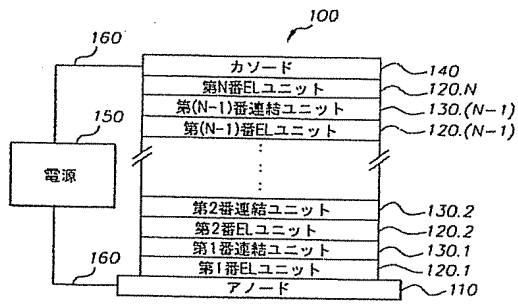
40

50



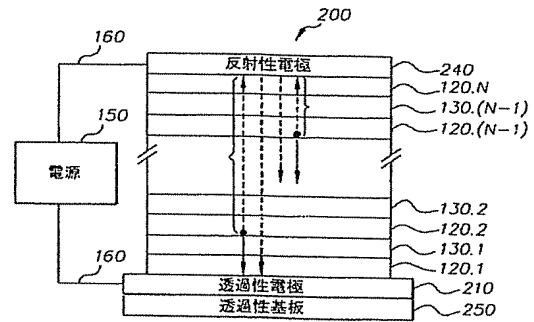
【 図 1 】

図1



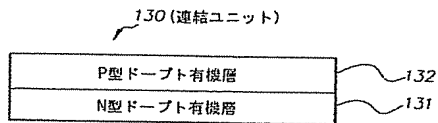
【 図 3 】

図3



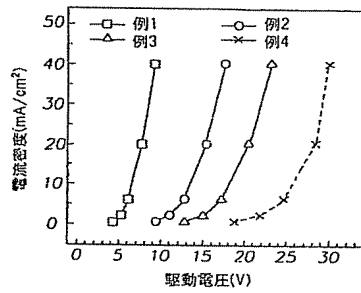
【 図 2 】

図2



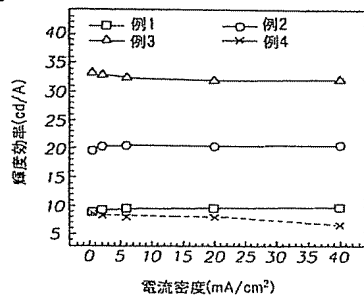
【 図 4 】

図4



【 図 5 】

図5



## フロントページの続き

(72)発明者 リャンーシェン リャオ

アメリカ合衆国, ニューヨーク 1 4 6 2 0, ロチェスター, クリントウッド ドライブ 6 シー

(72)発明者 ケビン ピー. クラベック

アメリカ合衆国, ニューヨーク 1 4 5 8 0, ウェブスター, ルソー ドライブ 1 1 7 5

(72)発明者 ダスティン エル. コンフォート

アメリカ合衆国, ニューヨーク 1 4 5 8 0, ウェブスター, カントリー マナー ウェイ 1 3  
6

(72)発明者 チン ダブリュ. タン

アメリカ合衆国, ニューヨーク 1 4 6 2 5, ロチェスター, パーク レーン 1 7 6

Fターム(参考) 3K007 AB03 AB05 AB18 BA05 DA06 DB03 FA01